



500.43535X00

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

Applicant(s): H. YAMAUCHI, et al.

Serial No.: 10/785,984

Filed: February 26, 2004

Title: FUEL CELL AND SEPARATOR FOR COOLING USED THEREIN

**LETTER CLAIMING RIGHT OF PRIORITY**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

March 12, 2004

Sir:

Under the provisions of 35 USC 119 and 37 CFR 1.55, the applicant(s) hereby  
claim(s) the right of priority based on:

**Japanese Patent Application No. 2003-389166  
Filed: November 19, 2003**

A certified copy of said Japanese Patent Application is attached.

Respectfully submitted,

ANTONELLI, TERRY, STOUT & KRAUS, LLP

William I. Solomon

Registration No.: 28,565

WIS/rr  
Attachment



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 3 年 1 1 月 1 9 日  
Date of Application:

出 願 番 号                      特 願 2 0 0 3 - 3 8 9 1 6 6  
Application Number:

[ST. 10/C] :                      [ J P 2 0 0 3 - 3 8 9 1 6 6 ]

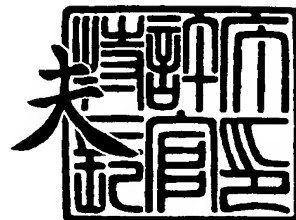
出      願      人                      株 式 会 社 日 立 製 作 所  
Applicant(s):



2 0 0 4 年    2 月 2 5 日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願  
【整理番号】 NT03P0807  
【提出日】 平成15年11月19日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【国際特許分類】 H01M 8/02  
【発明者】  
    【住所又は居所】 茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所 日立研究所内  
    【氏名】 山内 博史  
【発明者】  
    【住所又は居所】 茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所 日立研究所内  
    【氏名】 山賀 賢史  
【発明者】  
    【住所又は居所】 茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所 日立研究所内  
    【氏名】 高橋 宏  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000005108  
    【氏名又は名称】 株式会社日立製作所  
【代理人】  
    【識別番号】 100068504  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 小川 勝男  
    【電話番号】 03-3537-1621  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100086656  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 田中 恭助  
    【電話番号】 03-3537-1621  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100094352  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 佐々木 孝  
    【電話番号】 03-3537-1621  
【国等の委託研究の成果に係る記載事項】 平成15年度、経済産業省、固体高分子形燃料電池システム技術開発事業 固体高分子形燃料電池システム化技術開発事業 固体高分子形燃料電池システム実用化技術開発委託研究、産業再生法第30条の適用を受ける特許出願  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 081423  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

少なくとも一方のセパレータが波板上の流路を有する一对の金属製セパレータと、該セパレータの流路面間に挟持された中間体を有し、該中間体は弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性であり、前記流路面を除く部位にガスケットを具備していることを特徴とする燃料電池。

**【請求項 2】**

電解質膜電極と、その両側に設けられたガス拡散層と、該ガス拡散層の各々に接触し、波板状の流路を有する金属製のセパレータとを備えたユニットセルを複数個積層し、該積層体の中間部に冷却用セパレータを備えた燃料電池であって、該冷却用セパレータの流路面間に、弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性の中間板が挟持され、前記流路面を除く部位にガスケットを具備していることを特徴とする燃料電池。

**【請求項 3】**

前記中間板が、前記冷却用セパレータと接する面を除く部位の一部が開口した構造を有することを特徴とする請求項 2 記載の燃料電池。

**【請求項 4】**

前記中間板がカーボンペーパー、カーボンクロス、黒鉛シート、発泡金属、導電性ゴム及び導電性樹脂の中から選ばれる少なくとも 1 つの材料から構成されていることを特徴とする請求項 2 記載の燃料電池。

**【請求項 5】**

上記冷却用セパレータと少なくとも前記中間板と接触する面が、上記冷却用セパレータの酸化皮膜の成長を防止し、あるいは該冷却用セパレータの腐食を防止する導電性被覆物で被覆されていることを特徴とする請求項 2 記載の燃料電池。

**【請求項 6】**

電解質膜電極と、その両側に設けられたガス拡散層と、該ガス拡散層の各々に接触し、波板状の流路を有する金属製のセパレータとを備えたユニットセルを複数個積層し、該積層体の中間に設けられた冷却用セパレータを備えた燃料電池であって、前記冷却用セパレータは最外層がニオブ、タンタル、タングステン、チタン、チタン基合金、アルミニウム、アルミニウム基合金、ステンレス鋼及びニッケル基合金の中から選ばれる金属であり、かつ、少なくとも前記冷却用セパレータの通電面に、炭素層、炭素-樹脂混合物層、めっき層及び導電性セラミックス層の群から選ばれる被覆層が形成され、前記冷却用セパレータの流路面間に、弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性の中間板が挟持されていることを特徴とする燃料電池。

**【請求項 7】**

波板状の流路を有する一对の金属製の冷却用セパレータの流路面間に、弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性の中間板が挟持されて、前記流路面を除く部位にはガスケットが挟持されていることを特徴とする燃料電池冷却用セパレータ。

**【請求項 8】**

前記冷却用セパレータと接する面を除く前記中間板の部位の一部が開口した構造を有することを特徴とする請求項 7 記載の燃料電池冷却用セパレータ。

**【請求項 9】**

前記中間板がカーボンペーパー、カーボンクロス、黒鉛シート、発泡金属、導電性ゴム及び導電性樹脂の中から選ばれる少なくとも 1 つの材料であることを特徴とする請求項 7 記載の燃料電池冷却用セパレータ。

**【請求項 10】**

前記冷却用セパレータが少なくとも前記中間板と接触する面が、冷却用セパレータの酸化皮膜成長あるいは腐食を防止する導電性被覆物により被覆されていることを特徴とする請求項 7 記載の燃料電池冷却用セパレータ。

**【請求項 11】**

少なくとも一方が波板状の流路を有する金属製的一对の冷却用セパレータの流路面間に

、弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性の中間板が挟持され、該冷却用セパレータの最外層がニオブ、タンタル、タンゲステン、チタン、チタン基合金、アルミニウム、アルミニウム基合金、ステンレス鋼及びニッケル基合金の中から選ばれる金属であり、かつ、少なくとも前記冷却用セパレータの通電面に、炭素層、炭素－樹脂混合物層、めっき層及び導電性セラミックス層の中から選ばれる被覆層が設けられていることを特徴とする燃料電池冷却用セパレータ。

## 【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池及びそれに用いられる冷却用セパレータ

## 【技術分野】

【0001】

本発明は固体高分子型燃料電池およびそれに用いられる冷却用セパレータに関する。

## 【背景技術】

【0002】

種々の燃料電池の中で、固体高分子形燃料電池は、高分子からなる膜状の固体電解質の両面に白金等の触媒を担持したカーボン電極を接合して構成されている点が主な特徴である。これをMEAと呼ぶ(Membrane Electrode Assembly; 電解質膜電極一体化構造)。固体高分子形燃料電池はセパレータとよばれる燃料ガス(水素を含むガス)および酸化剤ガス(酸素あるいは空気)の流路が形成された一对の板で、MEAを挟持した構造をとっている。これを単セルといい、燃料電池スタックはこの単セルを複数個積層したものである。セパレータは反応ガス(燃料ガスと酸化剤ガスを総称)を電極に効率良く電極へ供給する役割を担っており、反応ガスを燃料電池に供給して適当な負荷をかけると電力を取り出すことができる。これに伴い、反応熱やジュール熱などの熱も発生する。この熱を除去するために、通常、前記セパレータの一部は冷却水を通すための冷却用セパレータを構成する。

【0003】

冷却用セパレータは隣り合うセルにエネルギーの損失を少なく電力を伝える役割も担っているため、通常、炭素系の導電性材料で構成されている。この他、金属薄板を用いることも検討されている。金属は原料費が廉価で、かつ、プレス加工が容易であること、薄板を使用できるため、コンパクトで軽量化できるといった多くのメリットも有するためである。

【0004】

しかし、金属を用いたセパレータの場合、金属薄板をプレス加工して流路溝を形成すると、溝の頂点が曲率を有する形状となりやすい。セパレータは電気を良好に通す必要から、流路溝の頂点が出来るだけ平坦であることが好ましいが、金属薄板をプレス加工すると、流路溝の溝ピッチが狭いため、頂点部に曲率がつきやすくなるためである。その結果、セパレータとセパレータとが直接接触する構造をとる冷却用セパレータにおいて、電気抵抗が高く、電圧降下が大きくなるという問題があった。

【0005】

燃料電池はセパレータやガス拡散層、MEA等の部材の組合せが数十セル単位で複数積層された構造であるため、各部材間の接触抵抗を極力小さくすることが高電池効率の燃料電池を得るために重要な課題である。

【0006】

図7は従来の冷却部におけるプレス金属セパレータが互いに接触する様子を示す断面図である。二枚のプレス金属セパレータ1を突き合わせて形成される空間が冷却水の通過溝となる。溝の頂点が平坦でないためにセパレータ同士が線あるいは点で接触し、そのために接触抵抗が高く、良好な発電性能を得ることが困難であった。これを解決するために特許文献1は頂点の曲率を有する部分を切削除去し、平坦化した構造を示している。特許文献2はセパレータ板間の冷却水面での接触抵抗に由来する電圧降下を防止するため、セパレータ板同士の接触面に導電性のシートガスケットを介在させた構造を取っている。

【0007】

【特許文献1】特開2003-173791号公報

【0008】

【特許文献2】特開2003-123801号公報

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

【0009】

セパレータとセパレータとの接面部は接触抵抗による電圧降下を極力避けるため、接面部の面積は適度に大きくとる必要がある。プレス加工により波板状に形成したセパレータの場合、接面部となる波板の頂点は金属材料の塑性加工限界により平坦化することが困難で、曲率を有する場合が多い。特許文献1は頂点の一部を切削除去して平坦化したものであるが、金属材料は剛性が高いために、平坦部を形成したとしても、線接触や点接触となりやすい。特許文献2は導電性のシートガasketをセパレータ板同士の接触面に介在させて電圧降下を抑えた構造を示している。そのため、薄板をプレス加工して流路を形成した金属セパレータは流路面とガasketを被せる周辺部の高さが異なるので、導電性のシートガasketを適用することができない。

#### 【0010】

本発明は特に燃料電池の冷却用に用いられるプレス成型された薄板金属セパレータ間の接触抵抗を簡単に効率良く低減できる手段を提供することを目的とする。この他、金属製のセパレータにおいては、燃料電池の発電と共にセパレータ表面に不働態皮膜が成長し、次第に抵抗が増加することがある。本発明は、不働態皮膜の成長を防止し、抵抗増大を防止する手段も提供するものである。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0011】

本発明は、少なくとも一方のセパレータが波板上の流路を有する一対の金属製セパレータと、該セパレータの流路面間に挟持された中間体を有し、該中間体は弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性であり、前記流路面を除く部位にガasketを具備していることを特徴とする燃料電池に関する。

#### 【0012】

又、本発明は、電解質膜電極と、その両側に設けられたガス拡散層と、該ガス拡散層の各々に接触し、波板状の流路を有する金属製のセパレータとを備えたユニットセルを複数個積層し、該積層体の中間部に冷却用セパレータを備えた燃料電池であって、該冷却用セパレータの流路面間に、弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性の中間板が挟持され、前記流路面を除く部位にガasketを具備していることを特徴とする燃料電池を提供するものである。

#### 【0013】

本発明の第1の実施態様は、燃料電池の冷却部における接触抵抗を低減するため、金属製の波板状の流路を一部に有する燃料電池冷却用セパレータにおいて、前記冷却用セパレータと隣り合うセパレータとの間に弾性及び／あるいは圧縮性を有し、かつ導電性の中間板が前記冷却用セパレータの流路面上で挟持され、前記流路面を除く部位はガasketを具備した燃料電池冷却用セパレータおよび前記セパレータを用いた燃料電池とした。

#### 【0014】

第2の実施態様は、前記中間板のうち、前記冷却用セパレータと接する面を除く部位の一部が開口した構造であることを特徴とする燃料電池冷却用セパレータであり、これにより接触抵抗を低減する他に冷却効果も高めた。

#### 【0015】

第3の実施態様は、前記中間板がカーボンペーパー、カーボンクロス、黒鉛シート、発泡金属、導電性ゴム及び導電性樹脂の群から選ばれる少なくとも1つの材料により構成することで、低接触抵抗化を実現するものである。

#### 【0016】

第4の実施態様は、前記冷却用セパレータの腐食を防止し、あるいは不働態皮膜の成長を抑制して、長時間にわたり低接触抵抗の効果を持続させるために、前記冷却用セパレータが少なくとも前記中間板と接触する面に冷却用セパレータの酸化皮膜の成長を抑制し、あるいは腐食を防止する導電性被覆物により被覆されたものである。

#### 【0017】

第5の実施態様は、波板状の流路を有する金属製の燃料電池冷却用セパレータであって、前記冷却用セパレータは最外層がニオブ、タンタル、タングステン、チタン、チタン基

合金、アルミニウム、アルミニウム基合金、ステンレス鋼及びニッケル基合金の中から選ばれる金属であり、かつ、少なくとも前記冷却用セパレータの通電面に、炭素層、炭素樹脂混合物層、めっき層及び導電性セラミックス層の中から選ばれる被覆層を設け、前記冷却用セパレータが隣り合う冷却用セパレータとの間に弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性の中間板を前記冷却用セパレータの流路面上に設けることで、特に接触抵抗の低減および長時間にわたる効果の持続性を高めた。

#### 【0018】

以上列举した冷却用セパレータを用いることにより、長時間にわたり電池出力が高い燃料電池を構成することができる。

#### 【発明の効果】

#### 【0019】

本発明によれば、2枚の冷却用のセパレータで形成される空間部に、弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性を有する中間板を具備することにより、セパレータ間の接触面積を広くとることが可能となり、その結果、燃料電池の出力性能を向上させることができる。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0020】

本発明は冷却用セパレータを構成する、隣り合う金属セパレータ同士の接触抵抗を低減し、燃料電池の電池効率を高める手段を提供する。また、発電に伴う金属セパレータ表面の不働態皮膜成長も抑制し、長時間にわたり、良好な電池性能を維持できる手段を提供する。そのために、隣り合う冷却用セパレータ間に弾性及び／あるいは圧縮性を有し、かつ、導電性の中間体を挟持したものである。

#### 【0021】

図1は本発明の第1の実施態様によるセパレータの一部断面を示す図である。2枚のセパレータ1Aとセパレータ1Bは薄板をプレス加工して中央部に波板部を形成させたセパレータであり、お互いの頂点と頂点が向かい合う構成をとっている。これらセパレータ1Aと1Bの間には弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性を有する中間体2を介在させ、適度な押し付け圧で挟持される。このとき、セパレータ1Aと1Bの頂点により中間体2が潰されるため2枚のセパレータ1Aと1Bは中間体2を介して広い面積で接触できるようになる。その結果、セパレータ1Aとセパレータ1Bとの接触抵抗が小さくなる。

#### 【0022】

なお、2枚のセパレータ1で形成される冷却部を冷却セルと呼ぶことにする。後述するが、2枚のセパレータ1を重ね合わせ、その間にMEA6を挟持した、発電するセルを発電セルと呼ぶことにする。

#### 【0023】

図2はセパレータ1Aおよびセパレータ1Bの表面に不働態皮膜の成長を防止する被覆層3を設け、中間体2を挟持した構成を示す。金属製のセパレータは貴金属を除くと、自然に不働態皮膜が成長し、抵抗の増大をもたらす。不働態皮膜は絶縁体あるいは半導体的性質を有しているため、不働態皮膜の成長は電気伝導性を悪化させる原因となる。特に燃料電池環境では温度が高く、水分も存在し、電流が流れる環境にさらされていることから、不働態皮膜の成長が著しい。これを防ぐためには金属を環境から隔離する方法が有効である。図2に示した被覆層3はセパレータ1Aおよび1Bの両面全面に被覆したが、必ずしも全面に塗布する必要は無く、中間体2と接する部位にのみ形成してもよい。

#### 【0024】

#### (実施例1)

本発明の実施例を説明する。図3は本発明による燃料電池を示す展開図である。図4は図3に示したガスケット付きセパレータアッセンブリ5A～5Fの内の1つの構成を示す。最初にガスケット付きセパレータアッセンブリ5の構成から説明する。ガスケット付きセパレータアッセンブリ5は基板であるセパレータ1とガスケット4とを張り合わせた構



成である。セパレータ1は板厚0.2mmのSUS304鋼製薄板を張り出しプレス加工で中央部に直線状の流路溝を形成したもので、外径160mm×120mmである。流路溝の外周にはシール部を付与するための平坦部103を設けてある。流路溝の頂点幅および溝幅はそれぞれ2mm、溝の深さは0.5mm、流路溝部の大きさは100×100mmである。セパレータ1の平坦部103にガスケット4を接着しており、このガスケット4はセパレータに設けたマニホールド101からの冷却水（発電セルの場合は反応ガス）を流路溝部102に導入する役割を有する。そのために複数のマニホールド401および一部を切欠したマニホールドが設けられている。セパレータ1にガスケット4を張り合わせたものをガスケット付きセパレータ5とする。

#### 【0025】

図4のガスケット付きセパレータアッセンブリ5を用いて燃料電池に組み込んだものが図3である。ここでは4つの発電セルと1つの冷却セルで構成される燃料電池を例として説明する。ガスケット付きセパレータアッセンブリ5A～5Fの6枚を用いて発電セルおよび冷却セルを形成する。ガスケット付きセパレータアッセンブリ5Aと5Bとの間、5Bと5Cの間、5Dと5Eの間および5Eと5Fの間にMEA6およびガス拡散層7を挟み、発電セルとする。MEA6／ガス拡散層7と対峙するガスケット付きセパレータアッセンブリ5の表面には不働態皮膜の成長を抑制し、あるいは腐食の発生を抑えるための表面処理を施した。ここでは代表的な手段として、フェノール系樹脂バインダ（40wt%）と平均直径100μmの鱗片状黒鉛（50wt%）およびMMP（N-Methyl-2-pyrrolidone）（10wt%）の混合物からなる導電性塗料を被覆した。これを熱処理して導電性被覆層を形成した。

#### 【0026】

なお、MEA6は外形160mm×120mm、膜厚0.05mmのパーフルオロスルホン酸の電解質膜に40wt%で白金を担持したカーボンブラックが、その白金量が0.4mg/cm<sup>2</sup>となるようにセパレータの流路溝と同等のサイズで塗布されたものである。反応ガスおよび冷却水の送気、排気および送水、排水のためのマニホールドが形成されている。

#### 【0027】

冷却セルはガスケット付きセパレータアッセンブリ5Cと5Dの間に中間体2を挟持して形成される。ガスケット付きセパレータアッセンブリ5Aおよび5Fの外側には電力を取り出すための集電板8、絶縁板9および端板10が設けられている。図示していないが、ボルト・ナット等を用い、2枚の端板10間を締め付けることによって燃料電池が完成する。このとき、適度な締め付け圧力で中間体2が圧縮変形される必要がある。このような性質を満足する材料として、導電性ゴムなどに代表される弾性体及び／あるいはカーボンペーパーやカーボンクロスなどの可圧縮体が好ましい。ステンレス鋼やニッケル製などの発泡金属であってもよい。例えば、肉厚0.2mmのカーボンペーパーを中間体2として用いた場合、本実施例における電池の締め付け圧力10kgf/cm<sup>2</sup>を加えると、中間体2がセパレータ1と接触する面において、肉厚が約10%程度、圧縮変形する。感圧紙を挿入して面当たりを測定すると、これによって、セパレータ1と中間体2との接触面積を2倍前後増加させることができた。中間体2の硬さは弾性係数にして、数kgf/cm<sup>2</sup>から数10kgf/cm<sup>2</sup>のものが適当である。

#### 【0028】

端板10に設けた反応ガスの出入り口部より燃料ガスおよび酸化剤ガスを通気すると、ガスケット付きセパレータ5、MEA6のマニホールドを介し、4つの発電用セルに設置したMEA6の両面にそれぞれのガスが独立して供給される。これによってMEA6の両電極面間に起電力が得られ、集電板間に適当な負荷を接続することにより電力を取り出すことが出来る。

#### 【0029】

冷却水も同様に、端板10から供給され、マニホールドを介してガスケット付きセパレータアッセンブリ5Cおよび5Eによって形成される空間部に供給される。これにより、

発電に伴う熱を除去できる。

#### 【0030】

##### (実施例2)

実施例1で述べた冷却セル部は平坦な板状の中間体2を用いた。この中間体2の代わりに、セパレータ1と接触しない部分を抜いて、スリット状とした中間体2A用いてもよい。図6はスリット状とした中間体2Aの平面図を示す。図7は、前記スリット状の中間体2Aを冷却セルに組み込んだ様子を示した図である。中間体2Aがセパレータ1と接する部位を除き、図5のように型打ち抜きなどの手段を用いて複数のスリット201Aを設ける。2枚のガスケット付セパレータ5との間にスリット状の中間体2Aを挟み込み、ガスケット付セパレータアッセンブリ5のリブ頂点と中間体2Aの格子202Aが接触するように配置する。

#### 【0031】

このような中間体2Aを用いると、冷却水の通路断面を増加させることができるため、通水に伴う圧損を低減することが可能となり、その結果、高効率の燃料電池を得ることができる。さらに、実施例1で示した中間体2の場合はガスケット付きセパレータアッセンブリ5Cと5Dとで形成される冷却水用の空間が、中間体2により分断されるため、冷却水の流れ具合が分断された空間で異なり、冷却効果に差異が生じることがある。図5に示す中間体2Aを用いることで冷却効果が異なるのを防止することができる。また、冷却セル挟んだ両側の発電セルの発熱量が異なる場合があり、このとき、図5に示した中間体2Aを用いると、冷却セルを分断することが無いため、均一な冷却効果を得ることができる。

#### 【0032】

##### (実施例3)

本実施例では実施例1で示した燃料電池を発電した例について説明する。ここでは試験のために、燃料電池へ与える負荷は電子負荷装置を用いた。燃料電池の2つの集電板8を電子負荷装置に接続し、所定の電流を設定することにより任意の負荷を燃料電池に与えることができる。燃料電池に供給する燃料ガスは純水素、酸化剤ガスは空気とし、燃料電池に供給する前に加湿器を用いて所定の露点になるよう制御した。冷却水は電池の温度が一定となるように入り口温度を制御した。

#### 【0033】

次の運転条件により発電を行った。水素利用率80%、酸素利用率40%、燃料ガス露点60℃、酸化剤ガス露点50℃、電池温度70℃とし、温度および流速が定常に達した後、負荷を与えた。電流密度0.25 A/cm<sup>2</sup>において24時間定常発電し、電池電圧が一定に達したときの電池電圧は2.8 Vで一セルあたりの平均セル電圧は0.71 Vであった。負荷を停止し、4端子法による交流抵抗を測定したところ、0.65 mΩ・cm<sup>2</sup>であった。

#### 【0034】

同じような条件で、中間体2がない場合の電池電圧および交流抵抗を測定した。電池電圧は2.6 Vで1セルあたりの平均セル電圧は0.67 Vであった。中間体2を設けることで、接触抵抗を低減でき、結果、電池電圧を高めることができる。

#### 【0035】

##### (実施例4)

実施例2で述べた中間体2がある場合と、中間体2が無い場合のいずれの燃料電池も発電時間が経過するにしたがって次第に電池電圧が低下した。例えば、発電を開始してから150 h後には電池電圧がいずれの場合も0.2~0.3 V低下した。特に冷却セル部の電圧降下および交流抵抗が大きくなっており、電池電圧の低下は冷却セル部に起因することが分かった。冷却セルにおけるセパレータ1の表面に、図2で示したような被覆層3を形成すると、電圧低下をほぼ抑えることができた。この被覆層3は実施例1の発電セルにおけるガスケット付きセパレータ5と同様の手段で形成したが、導電性を有し、かつ、下地となるセパレータ1表面の腐食を抑える機能あるいは不働態皮膜の成長を抑える機能

を有していれば、いずれであってもよい。本実施例ではフェノール系バインダと黒鉛との混合物による塗料塗布の手段を用いたが、この他例えば、金めっきや、導電性セラミックスの被覆物であっても効果を発揮する。好ましくは本実施例で用いたような被覆層 3 のピンホールが少なく、処理プロセスが簡便な導電性塗料の塗布が有利である。導電性塗料のなかでも、フッ素系樹脂をバインダとし、導電材がカーボンブラックや黒鉛との混合物を塗布すると、フッ素樹脂は透水性が極めて小さいため、下地金属の保護性と導電性を、高い性能で長時間にわたり発揮させることができる。

#### 【0036】

導電性塗料の効果は、例えば先に述べたフェノール系バインダと黒鉛との混合物による塗料塗布の手段を用いることにより、冷却セル部における抵抗増加は 1000 h の発電後で  $0.01 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$  以下に、電圧降下は 3 mV 以下に抑えることができた。

#### 【0037】

本実施例で用いたセパレータ 1 の材質は SUS 304 鋼などの耐食合金であるが、これは一例であって、この他、耐食性を有する金属であればいずれであってもよい。特に、ニオブ、タンタル、タングステン、チタン、チタン基合金、アルミニウム、アルミニウム基合金、ステンレス鋼及びニッケル基合金が好ましい。

#### 【0038】

これら金属は 70℃、温水中で良好な耐食性を示すためである。これ以外の金属、例えば鉄や銅は 70℃、温水中で容易に腐食するため、MEA 6 の劣化を加速する金属イオンの放出量が多くなり、好ましくない。これはどのような被覆層 3 であっても、ピンホールやクラック、隙間の発生が少なからず生じているためで、セパレータ 1 が腐食され易いと、これらピンホールやクラックを通して腐食生成物が漏れ出す。

#### 【0039】

一方、前記耐食性金属であっても、そのままでは不働態皮膜が急速に成長するため、炭素層、炭素-樹脂混合物層、めっき層、導電性セラミックス層の中から選ばれる被覆層 3 を設けて、外界とを遮閉するのが好ましい。これにより不働態皮膜の成長を抑えることができるようになる。被覆層 3 を設ける部位は必ずしもセパレータ表面の全部である必要は無く、電気を通す部位、つまり、セパレータ 1 が中間体 3 と接する部位にのみ塗布することもできる。これにより被覆層 3 の使用量を減らすことができ、経済的効果が大きい。

#### 【0040】

以上述べた実施例は本発明のいくつかの実施形態を示すものであり、冷却用の金属製セパレータに圧縮性あるいは弾性及び／あるいは可圧縮性を有しかつ、導電性を有している中間板を設ける構造であればいずれであってもよい。本発明で例示した冷却セル部は波板加工したセパレータ 1 を 2 枚向かい合わせた構造であるが、波板と平板のセパレータ 1 との組合せであってもよい。中間体 2 はカーボンペーパーを代表として示したが、この他、カーボクロスや発泡金属、導電性ゴム、導電性樹脂のように弾性あるいは可圧縮性の材料を用いても同じ効果が得られる。ただし、電気伝導性あるいは耐食性の観点から、カーボンペーパーやカーボクロスが好ましい。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0041】

【図 1】 本発明の第 1 の態様による冷却用セパレータアセンブリの断面斜視図。

【図 2】 本発明の他の実施態様による冷却用セパレータの断面斜視図であり、中間板を挟持した一对の冷却用セパレータの表面に不働態皮膜の成長を防止する被覆層を設けた構成を示す図。

【図 3】 本発明による燃料電池の構成要素を示す展開図。

【図 4】 図 3 に示したガスケット付きセパレータアセンブリの構成を示す展開図。

【図 5】 スリット状構造の中間板の平面図。

【図 6】 スリット状構造の中間板とそれを挟持する一对の冷却セパレータの展開図。

【図 7】 従来的一对のプレス金属セパレータを互いに接触して冷却通路を構成した冷却セパレータの断面斜視図。

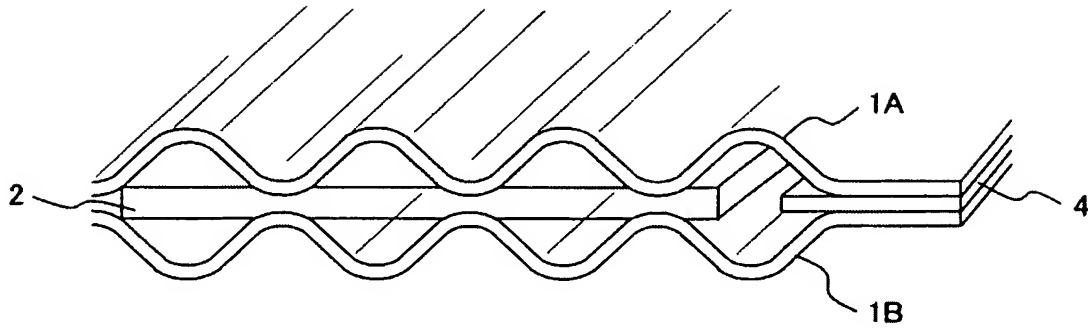
## 【符号の説明】

## 【 0 0 4 2 】

1…セパレータ、2…中間体、3…被覆層、4…ガスケット、5…ガスケット付きセパレータ、6…MEA、7…ガス拡散層、8…集電板、9…絶縁板、10…端板、101…マニホールド（セパレータ）、102…流路溝部、103…平坦部、201…スリット、202…格子、104…リブ、401…マニホールド（ガスケット）。

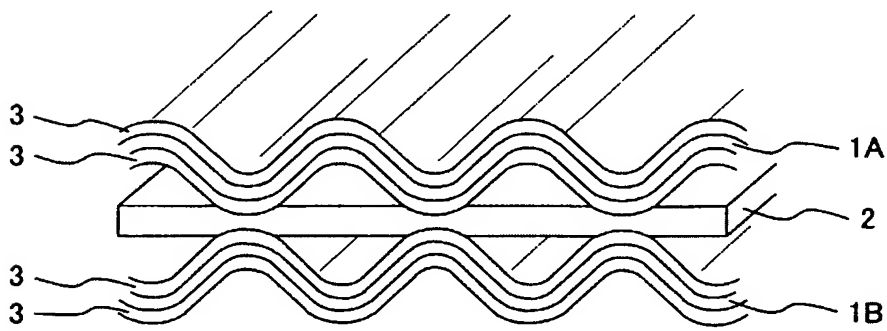
【書類名】 図面  
【図 1】

図 1



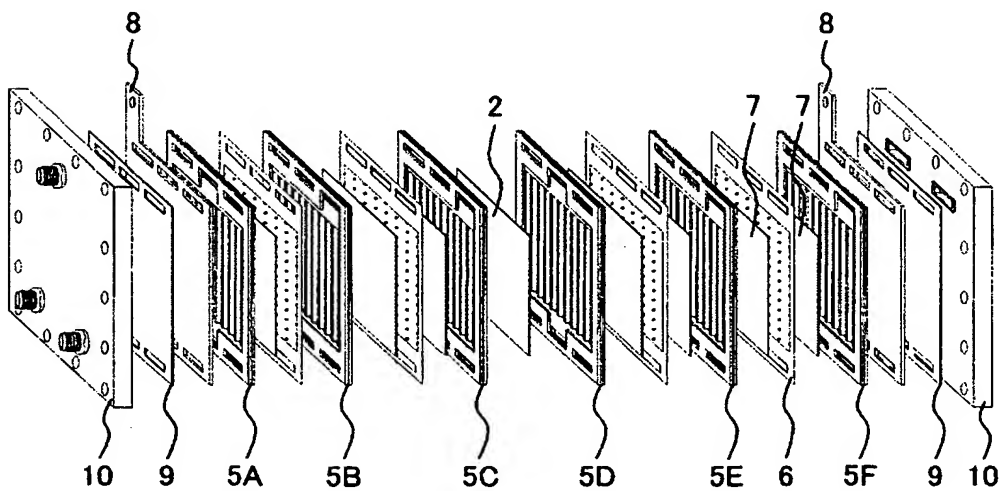
【図 2】

図 2



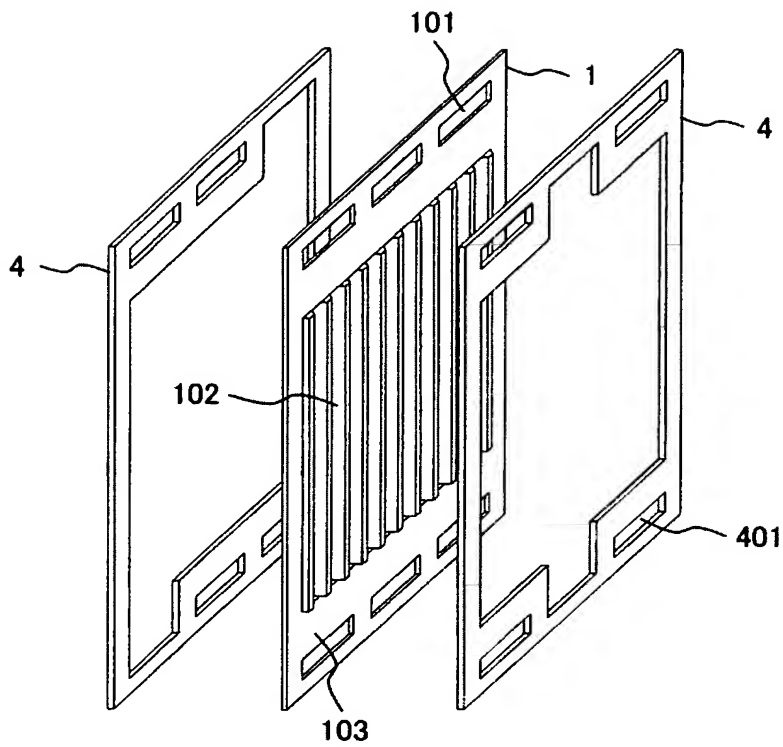
【図 3】

図 3



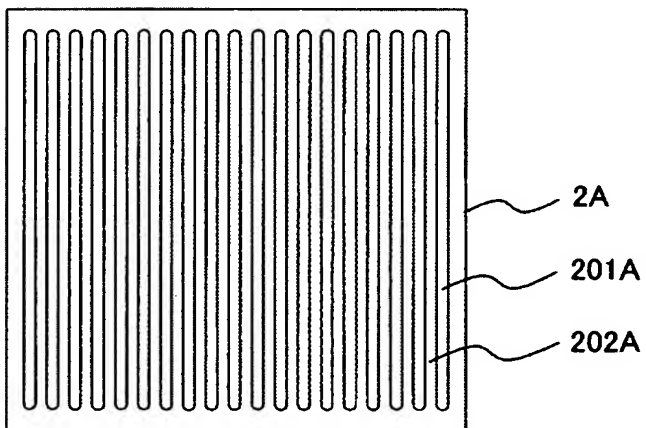
【図4】

図 4



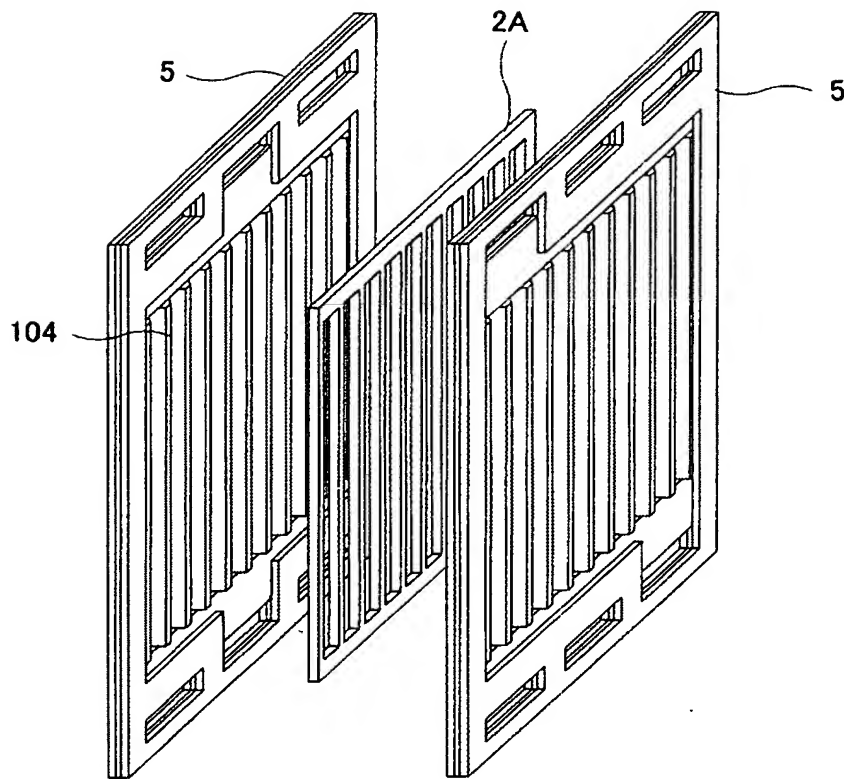
【図5】

図 5



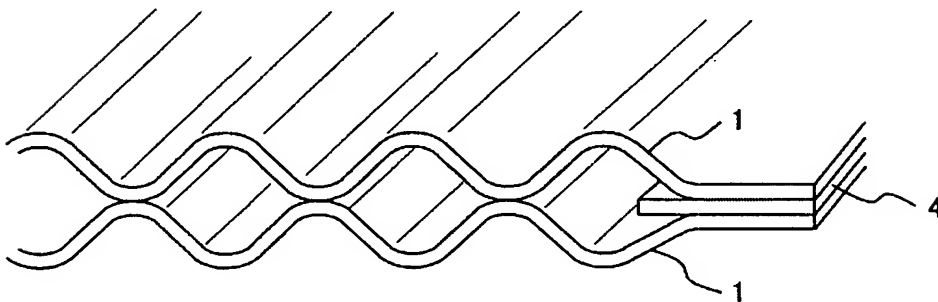
【図 6】

図 6



【図 7】

図 7



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 プレス金属で構成される燃料電池の冷却部における接触抵抗を低減し、出力性能を向上させること。

【解決手段】 電解質膜電極と、その両側に設けられたガス拡散層と、該ガス拡散層の各々に接触し、波板状の流路を有する金属製のセパレータとを備えたユニットセルを複数個積層し、該積層体の中間部に冷却用セパレータを備えた燃料電池であって、該冷却用セパレータの流路面間に、弾性及び／あるいは可圧縮性を有し、かつ導電性の中間板が挟持され、前記流路面を除く部位にガスケットを具備している燃料電池。

【選択図】 図 1



特願 2 0 0 3 - 3 8 9 1 6 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 5 1 0 8 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 3 1 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区神田駿河台 4 丁目 6 番地
氏 名	株式会社日立製作所